

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Application No. : Not Yet Assigned
Applicants : Koji KADA et al.
Filed : Concurrently Herewith
Title : AQUEOUS COATING LIQUID FOR FORMING A
MAGNESIUM OXIDE FILM

MAIL STOP PATENT APPLICATION
Commissioner for Patents
P. O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. §119

Sir:

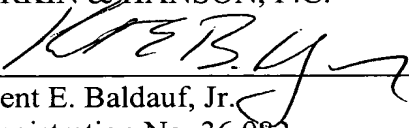
Attached hereto is a certified copy of Japanese Patent Application No. 2003-073890, which corresponds to the above-identified United States application and which was filed in the Japanese Patent Office on March 18, 2003.

The priority benefits provided by Section 119 of the Patent Act of 1952 are claimed for this application.

Respectfully submitted,

WEBB ZIESENHEIM LOGSDON
ORKIN & HANSON, P.C.

By


Kent E. Baldauf, Jr.
Registration No. 36,082
Attorney for Applicants
700 Koppers Building
436 Seventh Avenue
Pittsburgh, Pennsylvania 15219-1818
Telephone: 412-471-8815
Facsimile: 412-471-4094
E-mail: webblaw@webblaw.com

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 3 月 1 8 日
Date of Application:

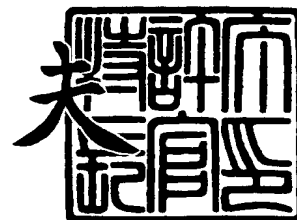
出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 0 7 3 8 9 0
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 3 - 0 7 3 8 9 0]

出 願 人 日 本 油 脂 株 式 有 限 公 司
Applicant(s):

2 0 0 4 年 2 月 2 6 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 0 1 4 1 9 8

【書類名】 特許願

【整理番号】 P103N05029

【提出日】 平成15年 3月18日

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府茨木市南春日丘 1 - 1 7 - 2 0 - 3 0 3

 【氏名】 加田 幸司

【発明者】

 【住所又は居所】 兵庫県西宮市丸橋町 4 - 2 0 - 5 0 8

 【氏名】 澤田 公平

【特許出願人】

 【識別番号】 000004341

 【氏名又は名称】 日本油脂株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100104673

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 南條 博道

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 050740

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(a) 炭素数 1 ～ 6 のカルボン酸のマグネシウム塩、

(b) 界面活性剤、

(c) 多価アルコール化合物、および

(d) 実質的に水からなる溶媒

を含有する酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液であって、

該塗布液全体の重量を基準として、該カルボン酸マグネシウム塩が 5 重量%以上 5 0 重量%以下、該界面活性剤が 0 . 0 1 重量%以上 2 . 5 重量%以下、そして該多価アルコール化合物が 0 . 0 5 重量%以上 4 0 重量%以下の割合で含有され、

該カルボン酸マグネシウム塩が、該多価アルコール化合物の含有量以上の量で含有され、かつ該カルボン酸マグネシウム塩および該多価アルコール化合物の合計重量が塗布液全体の重量の 8 0 重量%以下であり、そして、

該カルボン酸マグネシウム塩、界面活性剤、および多価アルコール化合物が、該溶媒に溶解した状態である、

酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液。

【請求項 2】

前記多価アルコール化合物の分子量が 1 0 0 0 以下である、請求項 1 に記載の酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液。

【請求項 3】

前記界面活性剤が金属元素およびハロゲン元素を含有しない、請求項 1 に記載の酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、プラズマディスプレイパネル（PDP）用誘電体保護膜などに用い

られる酸化マグネシウム薄膜を塗布成膜法により形成するために適した水系塗布液に関する。

【0002】

【従来の技術】

酸化マグネシウム薄膜は、PDP用保護膜、絶縁膜、触媒膜、表面保護膜など広い範囲に利用されている。従来、これら酸化マグネシウムをはじめとする金属酸化物の薄膜を形成する手法としては、スパッタ法、真空蒸着法などの物理的成膜法が用いられている。これらの手法を採用すると、均一で緻密な結晶性の高い薄膜が得られる反面、真空系で成膜を行うため、大型かつ複雑で高価な装置が必要である。さらに、バッチ式での生産であるため生産効率が悪く、製造コストが高くなるという問題がある。

【0003】

一方、上記物理的成膜法に対して、高価で複雑な装置の必要がなく、しかも簡単な工程で金属酸化物薄膜を形成できる方法として、塗布成膜法がある。塗布成膜法は、所望の金属化合物を含有する溶液を基板上に均一に塗布する工程、予備焼成を行って形成された薄膜の溶媒を完全に除去する工程、および高温で本焼成を行う工程を含む。最終的に均一かつ透明な金属酸化物薄膜を得るためには、各工程において塗布性あるいは形成された薄膜の均一性および透明性を維持する必要がある。

【0004】

特許文献1および特許文献2には、カルボン酸マグネシウム塩を溶剤に溶解した塗布液を用いて、酸化マグネシウム薄膜を形成する方法が開示されている。ここで用いられている溶媒はいずれも、キシレン、ブチルカービトールなどの有機溶媒である。このような有機溶媒を使用した塗布液を用いて成膜を行う場合には、基板上に均一に塗布することは容易に行うことはできるが、基板に塗布後、予備焼成を行う際、大気中に有機溶媒を放出するため、環境に対して悪影響を及ぼす可能性がある。

【0005】

これに対して、水を主体とする溶媒中に金属化合物、例えば、水溶性のカルボ

ン酸マグネシウム塩を含有する溶液を用いて、塗布成膜法により薄膜形成を行えば、有機溶媒を大気中に放出することなく、環境への悪影響を低減することができる。しかしながら、溶媒が水を主体とする塗布液を用いて、基板上に塗布を行っても、水の表面張力により基板上ではじかれてしまい、均一な膜を得ることはできない。また、上記水溶性のカルボン酸マグネシウム塩は一般的に短鎖のカルボン酸から構成されているため、カルボン酸マグネシウム塩自体の結晶性が高い。そのため、このような塗布液を基板に塗布し予備焼成を行うと、カルボン酸マグネシウム塩が結晶化して析出してしまい、基板上に透明かつ均一な薄膜を得ることは困難となる。

【0006】

水系塗布液を基板上に塗布するための手法として、特許文献3では、銅、チタン、ニッケル、マグネシウムなどの金属がEDTAなどのリガンドに配位して形成される金属錯体あるいはその塩を含有する水溶液、および造膜物質としてポリエチレングリコール、ポリビニルアルコール、コラーゲンなどの水溶性高分子化合物を含む塗布液が開示されている。しかしながら、これら高分子化合物を含む塗布液を基板上に均一に塗布することは可能であるが、予備焼成を行った際に白濁が発生し、均一性および透明性に優れた薄膜を形成することが難しい。

【0007】

【特許文献1】

特開平9-95627号公報

【特許文献2】

特開平9-129141号公報

【特許文献3】

特開2001-10816号公報

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、塗布液の溶媒として水を用い、短鎖のカルボン酸マグネシウム塩を高濃度に含有しており、かつ塗布時に基板上に均一に塗布でき、かつ予備焼成の後もカルボン酸マグネシウム塩の析出が起こらず、均一性および透明性が維持で

き、さらに焼成後においても、透明かつ均一で実用に耐えうる膜厚を有する酸化マグネシウム薄膜を形成することができる、酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液を提供することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記目的を達成するため鋭意検討を重ねた結果、特定のカルボン酸マグネシウム塩と界面活性剤と多価アルコール化合物とを実質的に水からなる溶媒に特定の組成比で溶解することにより、上記課題を解決し、本発明の完成に到った。

【0010】

本発明の酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液は、(a)炭素数1～6のカルボン酸のマグネシウム塩、(b)界面活性剤、(c)多価アルコール化合物、および(d)実質的に水からなる溶媒を含有する酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液であって；該塗布液全体の重量を基準として、該カルボン酸マグネシウム塩が5重量%以上50重量%以下、該界面活性剤が0.01重量%以上2.5重量%以下、そして該多価アルコール化合物が0.05重量%以上40重量%以下の割合で含有され；該カルボン酸マグネシウム塩が、該多価アルコール化合物の含有量以上の量で含有され、かつ該カルボン酸マグネシウム塩および該多価アルコール化合物の合計重量が塗布液全体の重量の80重量%以下であり；そして、該カルボン酸マグネシウム塩、界面活性剤、および多価アルコール化合物が、該溶媒に溶解した状態である。

【0011】

好適な実施態様においては、上記多価アルコール化合物の分子量は1000以下である。

【0012】

好適な実施態様においては、上記界面活性剤は金属元素およびハロゲン元素を含有しない。

【0013】

【発明の実施の形態】

以下に本発明を詳細に説明する。

【0014】

本発明の酸化マグネシウム薄膜形成用水性塗布液は、少なくとも、炭素数1～6のカルボン酸のマグネシウム塩（以下、カルボン酸マグネシウム塩（a）、（a）成分などという場合がある）、界面活性剤（以下、界面活性剤（b）、（b）成分などという場合がある）、多価アルコール化合物（以下、多価アルコール化合物（c）、（c）成分などという場合がある）、および実質的に水からなる溶媒（以下、溶媒（d）、（d）成分などという場合がある）を含む。

【0015】

（1）カルボン酸マグネシウム塩（a）

本発明の酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液に含有されるカルボン酸マグネシウム塩（a）は、それを構成するカルボン酸の炭素数が1～6である。このカルボン酸マグネシウム塩（a）としては、水に溶解可能であり、かつ溶解させたときに安定に保持され得る化合物が好適に選択される。上記カルボン酸の炭素数は、好ましくは、1～4である。カルボン酸の炭素数が6を超えると、該カルボン酸のマグネシウム塩の水への溶解性が著しく低くなる。そのため、塗布液中に含有される金属塩の濃度が低くなり、その塗布液を用いて形成された薄膜の膜厚は極端に薄く、実用に耐えうるものではない。

【0016】

本発明に用いられるカルボン酸マグネシウム塩（a）を構成するカルボン酸は、分子内に少なくとも1個のカルボキシル基を含有する。このカルボン酸は、水酸基、アミノ基、ニトロ基など、溶媒への溶解性を向上させる極性置換基を有していても良い。上記カルボン酸としては、蟻酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸、イソ酪酸、吉草酸、イソ吉草酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、グリコール酸、乳酸、アスパラギン酸、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、ビルビン酸、マレイン酸、イタコン酸などが挙げられる。カルボン酸マグネシウム塩（a）は、1分子中に同一のカルボン酸に由来する残基を有する化合物であっても、異なるカルボン酸に由来する残基を有する化合物であってもよい。さらに、2種以上のカルボン酸マグネシウム塩（a）の混合物を用いてもよい。

【0017】

後述のように、十分な膜厚の透明な薄膜を形成するためには、上記カルボン酸マグネシウム塩（a）としては、水に対して5重量%以上の溶解度を有する化合物を選択することが好ましい。本明細書において「水に対する溶解度」は、20℃の水に対する溶解度を意味する。水に対する溶解度が5重量%未満のカルボン酸マグネシウム塩を用いて透明かつ均一な塗布液を作成すると、その塗布液中の金属含有量が低くなる。従って、それを用いて塗布成膜を行うと膜厚の薄い薄膜しか得ることができない。また、このようなカルボン酸マグネシウム塩を溶解度を超える濃度で添加しても、得られる塗布液は白濁しており、それを用いて塗布成膜を行っても透明かつ均一な薄膜を得ることはできない。

【0018】

(2) 界面活性剤（b）

本発明の酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液において、界面活性剤（b）は水系塗布液が基板上ではじかれず均一に塗布できるように、塗布液の表面張力を下げる目的で添加される。

【0019】

この界面活性剤は、金属元素およびハロゲン元素を含有しないことが好ましい。界面活性剤として、金属成分を含有する界面活性剤を用いた場合には、塗布液を基板上に塗布・乾燥後に焼成して形成される酸化マグネシウム薄膜は、界面活性剤由来の金属成分を含有する。このような金属成分を含有する酸化マグネシウム薄膜は、酸化マグネシウム本来の電気特性が発揮できない可能性がある。また、ハロゲン元素を含有する界面活性剤を用いた場合、焼成時にハロゲンガスが発生し、焼成炉内を汚染する可能性がある。また、分解されずに酸化マグネシウム薄膜内にハロゲン元素が残存すると、薄膜の着色の原因になったり、薄膜の電気特性に悪影響を与える可能性がある。

【0020】

後述のように、十分な膜厚の透明な薄膜を形成するためには、上記界面活性剤（b）としては、水に対して0.01重量%以上の溶解度を有する化合物を選択することが好ましい。溶解度が0.01重量%未満の界面活性剤を低濃度で含有

する透明かつ均一な塗布液を調製しても、その塗布液に溶解している界面活性剤量では基板上への濡れ性は改善できない。そのため、塗布したときに基板上ではじかれてしまい、均一に塗布できない。水に対する溶解度が0.01重量%未満の界面活性剤を、0.01重量%以上の割合で水に添加しても、界面活性剤の溶解しない部分が塗布液中で白濁成分として存在する。その結果、そのような塗布液を用いて成膜を行っても透明かつ均一な膜は得ることができない。

【0021】

本発明の酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液に含有される界面活性剤（b）は、非イオン性界面活性剤、陰イオン性界面活性剤、陽イオン性界面活性剤、および両性界面活性剤の中から任意に選択できる。

【0022】

これらのうち、非イオン性界面活性剤を用いることが好ましい。非イオン性界面活性剤は、カルボン酸マグネシウム塩（a）の構成成分であるマグネシウムイオンやカルボン酸イオンの影響を受けにくく、界面活性能に優れ、塗布液の経時安定性に寄与するためである。イオン性の界面活性剤を用いた場合には、カルボン酸マグネシウム塩の成分（マグネシウムイオンあるいはカルボン酸イオン）と塩交換が起こり、塗布液の変性、界面活性能の低下などが起こる可能性がある。

【0023】

本発明に用いられる界面活性剤のうち、非イオン性界面活性剤としては、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルフェニルエーテル、ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンソルビタンモノ脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンアルキルアミンなどが挙げられる。

【0024】

陰イオン性界面活性剤としては、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸塩、アシルメチルタウリン塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、アルキルスルホコハク酸塩などが挙げられる。

【0025】

陽イオン性界面活性剤としては、アルキルアミン酢酸塩、アルキルトリメチル

アンモニウム酢酸塩、アルキルジメチルベンジルアンモニウム酢酸塩などが挙げられる。

【0026】

両性界面活性剤としては、ジメチルアルキルベタイン、アミドベタイン型界面活性剤、イミダゾリン型界面活性剤などが挙げられる。

【0027】

これらの界面活性剤は単独でも用いることができるし、2種類以上を組み合わせ用いることもできる。

【0028】

(3) 多価アルコール化合物 (c)

本発明の酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液において、多価アルコール化合物 (c) は、塗布液を基板上に塗布した後、予備焼成を行って溶媒を揮発させる際に、基板上で塗膜に白濁が生じるのを防止するために用いられる。

【0029】

以下の理論には拘束されないが、基板上の塗膜の白濁の原因のひとつとしては、カルボン酸マグネシウム塩 (a) の分子同士が会合することによる結晶化が考えられる。塗布液中に多価アルコール化合物 (c) が適切な量で存在すると、塗膜を形成後、予備焼成を行った際に、カルボン酸マグネシウム塩の金属部分に多価アルコール分子の水酸基が部分的に配位して、カルボン酸マグネシウム分子の間に入り込み、カルボン酸マグネシウム分子同士の会合・結晶化を阻害し、その結果、透明な薄膜が形成されると考えられる。

【0030】

本発明に用いる上記多価アルコール化合物 (c) は、分子量が1000以下であるのが好ましい。より好ましくは分子量は800以下である。分子量が1000を超える多価アルコール化合物が塗布液に含有される場合には、分子内における水酸基の密度が低いので、カルボン酸マグネシウム塩に多価アルコール化合物が効率的に配位できなくなると考えられる。そのため、結晶化を十分阻害することが困難となり、予備焼成を行なうと基板上でカルボン酸マグネシウム塩の凝集による白濁が生じやすくなる。さらに、分子量が1000を超えるような高分子量

多価アルコール化合物は分解性が悪く、焼成後、酸化マグネシウム薄膜中に炭素残渣が残る可能性があり、完全に分解させようとすれば高温を要する。

【0031】

上記多価アルコール化合物は、熱重量分析 (Thermal Gravimetry: TG) における重量減少終了温度が、200～500℃の範囲にあるのが好ましい。ここで、TGにおける重量減少終了温度とは、TG曲線において、重量減少が観察されなくなった時の温度である。重量減少終了温度が200℃未満の多価アルコール化合物を用いた場合には、予備焼成時および本焼成時にカルボン酸マグネシウム塩 (a) が分解する以前に多価アルコール化合物が揮発し、カルボン酸マグネシウム塩が基板上で結晶化する可能性がある。さらに、重量減少終了温度が500℃を超える場合には、本焼成後、多価アルコール化合物が完全に分解せず、膜内に分解残渣が含有される可能性がある。

【0032】

本発明の塗布液に含有される多価アルコール化合物 (c) としては、分子内に2つ以上の水酸基を有し、水に容易に溶解する化合物であれば、任意に使用することができる。例えば、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、グリセリン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、ジグリセリン、ソルビトール、マンニトール、ソルビタン、トリグリセリン等の低分子量多価アルコールを用いることができる。特に好ましくは、ジエチレングリコール、グリセリン、ジグリセリン、ソルビトール、ソルビタン、トリグリセリン等の室温において液状の多価アルコール化合物が好ましい。これらは、単独でも用いることができるが、重量減少終了温度の異なる2種類以上を混合して用いた方が、焼成時の体積収縮がより緩やかになり、ひび割れが起こるのを抑制することができる。

【0033】

(4) 溶媒 (d)

本発明の塗布液に含有される溶媒 (d) は、溶媒は実質的に水からなる。ここで「実質的に水からなる溶媒」とは、水であるか、もしくは水を主成分として含有し、全体として水と同等あるいは類似の性質を有する溶媒を指して言う。溶媒 (d) 中における水の含有量は、塗布性能の点から、70重量%以上であること

が好ましい。溶媒（d）としては、水、および本発明の効果を妨げない範囲で水溶性のアルコール系溶媒を含有する水性溶媒が挙げられる。溶媒（d）としては、水溶性のアルコール系溶媒を30重量%未満、より好ましくは20重量%未満、特に好ましくは10重量%未満で含有している水性溶媒、もしくは水が好ましい。水以外の溶媒が30重量%を超えて含有されると、界面活性剤による濡れ性向上効果が十分に得られず、塗布時に基板上ではじかれたり、ムラができて均一に塗布できなくなる。上記水溶性アルコールとしては、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノールなどが挙げられる。

【0034】

（5）水系塗布液

本発明の水系塗布液は、上述のように、カルボン酸マグネシウム塩（a）、界面活性剤（b）、多価アルコール化合物（c）、および溶媒（d）を含有し、これらの成分は塗布液中に溶解した状態で存在する。

【0035】

上記カルボン酸マグネシウム塩（a）は、塗布液中に5重量%以上50重量%以下の範囲で含有される。a成分の含有量が5重量%未満の場合には、塗布液中の金属含有量が低くなり、その塗布液を用いて塗布製膜を行うと、薄い膜が形成される。そのような薄膜は、実用に耐えうる十分な厚みを有していない。a成分の含有量が50重量%を超えるとカルボン酸マグネシウム塩が塗布液中に完全に溶解せず、塗布液が白濁してしまい、それを用いて塗布成膜を行っても透明な薄膜は得られない。

【0036】

上記界面活性剤（b）は、塗布液中に0.01～2.5重量%の範囲で含有される。b成分の含有量が0.01重量%未満の場合には、塗布液の表面張力を低下させることが十分でなく、塗布液が基板上ではじかれてしまい、均一な塗布膜を得ることができない。b成分の含有量が2.5重量%を超える場合には、基板上への塗布性能は改善されるが、塗布後予備焼成を行った際に、余剰の界面活性剤が基板上で凝集し白濁する。その状態で焼成を行っても、白濁が残存し、透明、均一な薄膜は得ることができない。

【0037】

上記多価アルコール化合物(c)は、塗布液中に0.05～40重量%の範囲で含有される。c成分が0.05重量%未満の場合には、塗布後の予備焼成の際、溶媒が揮発した後に、基板上で白濁が生じやすくなる。c成分が40重量%を超える場合にも白濁が生じやすくなる。これは、予備焼成後にc成分同士が会合するためであると考えられる。このように、上記範囲を外れると、いずれの場合においても焼成により透明かつ均一な薄膜は得ることができない。

【0038】

上記a成分はc成分の含有量以上の量で含有される。a成分の含有量がc成分の含有量より少ないと、基板上で白濁を生じる。そのような状態で焼成を行っても、透明かつ均一な薄膜は得ることはできない。さらに、a成分とc成分との合計重量が塗布液全体の重量の80重量%以下であることが必要である。80重量%を超えて含有されると、相対的に塗布液中の溶媒の含有量が少なくなってしまう、カルボン酸マグネシウム塩を完全に溶解することが困難になる。そのような塗布液を用いて塗布成膜を行っても、透明かつ均一な薄膜は得ることができない。

【0039】

上記a成分、b成分、c成分、d成分、および必要に応じてその他の成分を均一に混合することにより、本発明の酸化マグネシウム薄膜形成用の水系塗布液が得られる。この塗布液は、酸化マグネシウム薄膜を形成すべき基板上に塗布される。基板としては、当該分野で通常用いられる基板、例えば、ガラス基板；ポリカーボネート、エポキシ樹脂などの樹脂でなる基板；これらの樹脂でなるフィルムなどが挙げられる。後述のように、後工程で、高温、例えば200℃以上の温度で焼成を行って金属酸化物薄膜を作成する場合には、ガラスが好適である。紫外光照射によって金属酸化物薄膜を形成する場合には、樹脂基板あるいは樹脂フィルムが好適である。

【0040】

上記塗布液を基板上に塗布する方法には、特に制限はない。例えば、刷毛塗り法、浸漬法、スピンコート法、スプレー法、スクリーン印刷法、ロールコーター

法、インクジェット方式によるパターン形成などが用いられる。これら塗布方法によって得られた膜を乾燥後、当該分野で通常用いられる方法により、酸化マグネシウム膜を得ることができる。例えば、200℃以上の温度で焼成する方法、紫外光を照射して基板上の薄膜を金属酸化物薄膜に変換する方法などを用いることができる。また、これらの方法を併用することもできる。

【0041】

焼成を行なう場合には、有機成分を完全に分解させるため、200℃以上の温度で焼成することが好ましく、350℃以上がさらに好ましく、450℃以上がさらに好ましい。

【0042】

本発明の塗布液を用いると、容易かつ均一に基板上への塗工が可能であり、透明で均一な酸化マグネシウム薄膜が基板上に形成され得る。

【0043】

【実施例】

以下に、本発明の水系塗布液を用いた酸化マグネシウム薄膜の形成方法について、実施例を挙げて具体的に説明する。なお、実施例において「部」は重量部を示す。

【0044】

(塗布液、塗布膜及び焼成膜の評価方法)

(I) 塗布液の外観の評価

塗布液の外観を目視にて評価する。後述の表において、評価結果は次の基準により記載されている。

○…透明である。

×…白濁、あるいは固体の存在が確認される。

【0045】

(II) 塗布性能の評価

スピンコーターで塗布液を基板表面に塗布し、塗布後の状態を目視にて観察する。

○…均一に塗布されている。

×…基板上ではじかれて均一に塗布されていない。

【 0 0 4 6 】

(III) 予備焼成後の薄膜の状態の評価

予備焼成後の薄膜の状態を目視にて観察する。

○…均一で透明である。

×…白濁し、またはひび割れが存在する。

【 0 0 4 7 】

(IV) 本焼成後の薄膜の状態の評価

焼成後の酸化マグネシウム薄膜の状態を目視にて観察する。

○…均一かつ透明であり、ひび割れも存在しない。

×…白濁し、またはひび割れが存在する。

【 0 0 4 8 】

(V) 焼成後に得られる酸化マグネシウム薄膜の膜厚

株式会社 U L V A C 製の触針式表面形状測定器 D E K T A C 3 S T を用いて膜厚を測定する。

【 0 0 4 9 】

(実施例 1)

表 1 に示す量の各成分（カルボン酸マグネシウム塩、界面活性剤、多価アルコール化合物、および水）を室温で混合し、塗布液を作成した。この塗布液をスピコーターを用いてガラス基板上に塗布した。その基板をあらかじめ 8 0 ℃ に加熱しておいたホットプレート上で 1 5 分間予備焼成した。次いで、そのガラス基板を焼成炉に入れ、空気雰囲気下、5 ℃ / 分の昇温速度で 4 5 0 ℃ まで加熱し、表面に酸化マグネシウム薄膜を有する基板を得た。

【 0 0 5 0 】

上記工程において、塗布液の外観、塗布性能（塗膜の外観）、予備焼成後の薄膜の状態、および本焼成後の薄膜の状態を上記評価方法に従って評価し、焼成後の酸化マグネシウム薄膜の厚みを上記方法により測定した。その結果を表 2 に示す。

【 0 0 5 1 】

(実施例 2 ～ 2 0)

表 1 に示す各成分を用い、実施例 1 と同様に塗布液を作成し、該塗布液を用いて酸化マグネシウム薄膜を有する基板を調製して、評価を行なった。その結果を表 2 に示す。

【 0 0 5 2 】

(比較例 1 ～ 1 5)

表 3 に示す各成分を用い、実施例 1 と同様に塗布液を作成し、該塗布液を用いて酸化マグネシウム薄膜を有する基板を調製して、評価を行なった。その結果を表 4 に示す。

【 0 0 5 3 】

【表1】

	カルボン酸Mg塩(a)		界面活性剤(b)		多価アルコール化合物(c)			水
	化合物	含有量 (部)	界面活性剤 のタイプ	化合物	含有量 (部)	化合物	含有量 (部)	重量減少 終了温度(°C)
実施例1	酢酸Mg	5	非イオン性	I	0.05	グリセリン	0.5	256.2
実施例2	酢酸Mg	20	非イオン性	I	0.1	グリセリン	2.0	256.2
実施例3	酢酸Mg	40	非イオン性	I	1.0	グリセリン	8.0	256.2
実施例4	酢酸Mg	50	非イオン性	I	1.0	グリセリン	10.0	256.2
実施例5	酢酸Mg	30	非イオン性	II	1.0	ジエチレングリコール	15.0	212.9
実施例6	酢酸Mg	30	非イオン性	II	2.0	ポリエチレングリコール (分子量400)	3.0	277.6
実施例7	酢酸Mg	30	非イオン性	III	1.0	PEG1000	3.0	297.3
実施例8	酢酸Mg	40	非イオン性	III	0.5	ソルビタン	6.0	348.1
実施例9	酢酸Mg	40	非イオン性	IV	1.0	ソルビトール	0.9	369.0
実施例10	酢酸Mg	30	非イオン性	IV	1.0	トリオロアルブミン	1.0	243.6
実施例11	プロピオン酸Mg	30	非イオン性	V	1.0	グリセリン	3.0	256.2
実施例12	グリコール酸Mg	30	非イオン性	V	0.5	グリセリン	6.0	256.2
実施例13	乳酸Mg	5	非イオン性	I	0.3	グリセリン	0.5	256.2
実施例14	酪酸Mg	30	非イオン性	I	1.5	ソルビタン	5.0	348.1
実施例15	イソ酪酸Mg	35	非イオン性	I	1.0	ソルビタン	10.0	348.1
実施例16	2-エチル酪酸Mg	30	非イオン性	I	2.0	ジエチレングリコール	1.0	212.9
実施例17	ギ酸Mg	5	非イオン性	I	0.2	ジエチレングリコール	0.5	212.9
実施例18	酢酸Mg	30	陰イオン性	VI	0.1	グリセリン	3.0	256.2
実施例19	酢酸Mg	30	陰イオン性	VII	0.1	ソルビタン	5.0	348.1
実施例20	酢酸Mg	40	陽イオン性	VIII	0.1	グリセリン	4.0	256.2

化合物I: ポリオキシエチレン(30モル)ラウリルエーテル、化合物II: ポリオキシエチレン(40モル)ニルフェニルエーテル、
 化合物III: ポリオキシエチレン(15モル)ステアリン酸エステル、化合物IV: ポリオキシエチレン(20モル)ソルビタンモノオレイン酸エステル、
 化合物V: ポリオキシエチレン(20モル)ステアリン酸アミン、化合物VI: ポリオキシエチレン(10モル)ラウリルエーテル硫酸トリエタノールアミン塩、
 化合物VII: ジオクチルスルホコハク酸アンモニウム塩、化合物VIII: ラウリルトリメチルアンモニウム酢酸塩

【0054】

【表 2】

	塗布液の外観	塗膜の外観	予備焼成後の 薄膜の状態	焼成後の薄膜 の状態	膜厚 (μm)
実施例1	○	○	○	○	0.11
実施例2	○	○	○	○	0.33
実施例3	○	○	○	○	0.50
実施例4	○	○	○	○	0.56
実施例5	○	○	○	○	0.37
実施例6	○	○	○	○	0.28
実施例7	○	○	○	○	0.30
実施例8	○	○	○	○	0.52
実施例9	○	○	○	○	0.53
実施例10	○	○	○	○	0.28
実施例11	○	○	○	○	0.22
実施例12	○	○	○	○	0.23
実施例13	○	○	○	○	0.12
実施例14	○	○	○	○	0.28
実施例15	○	○	○	○	0.18
実施例16	○	○	○	○	0.19
実施例17	○	○	○	○	0.11
実施例18	○	○	○	○	0.20
実施例19	○	○	○	○	0.21
実施例20	○	○	○	○	0.17

【0055】

【表 3】

	カルボン酸Mg塩(a)		界面活性剤(b)			多価アルコール化合物(c)				水	
	化合物	含有量 (部)	界面活性剤の タイプ	化合物	含有量 (部)	化合物	含有量 (部)	分子量	重量減少 終了温度(°C)	含有量 (部)	含有量 (部)
比較例1	酢酸Mg	10.0	非イオン性	I	1.0	グリセリン	15.0	92.1	256.2		74.0
比較例2	イソ酢酸Mg	20.0	非イオン性	I	0.5	ジエチレングリコール	30.0	106.1	212.9		49.5
比較例3	酢酸Mg	60.0	非イオン性	I	0.1	グリセリン	6.0	92.1	256.2		33.9
比較例4	プロピオン酸Mg	55.0	非イオン性	I	0.1	ソルビタン	1.0	164.2	348.1		43.9
比較例5	酢酸Mg	30.0	非イオン性	I	0.001	グリセリン	3.0	92.1	256.2		66.999
比較例6	グリコール酸	25.0	非イオン性	I	0.003	トリメチロールプロパン	5.0	134.2	243.6		69.997
比較例7	酢酸Mg	30.0	非イオン性	II	5.0	グリセリン	3.0	92.1	256.2		62.0
比較例8	ギ酸Mg	5.0	非イオン性	II	4.0	ソルビトール	4.0	182.2	369.0		87.0
比較例9	酢酸Mg	20.0	非イオン性	III	1.0	グリセリン	0.01	92.1	256.2		78.99
比較例10	乳酸Mg	5.0	非イオン性	III	0.5	PEG400	0.01	400	277.6		94.49
比較例11	酢酸Mg	45.0	非イオン性	IV	0.1	グリセリン	45.0	92.1	256.2		9.9
比較例12	酢酸Mg	30.0	非イオン性	IV	0.003	PEG4000	6.0	4000	499.7		63.0
比較例13	酢酸Mg	30.0	非イオン性	V	0.1	PEG11000	0.01	11000	510.7		69.89
比較例14	酢酸Mg	40.0	非イオン性	I	1.5	—*1	4.0	76.1	154.3		54.5
比較例15	オクチル酸Mg	3.0	非イオン性	I	1.0	グリセリン	1.0	92.1	256.2		95.0

化合物I: ポリオキシエチレン(30モル)ラウリルエーテル、化合物II: ポリオキシエチレン(40モル)ノニルフェニルエーテル、
 化合物III: ポリオキシエチレン(15モル)ステアリン酸エステル、化合物IV: ポリオキシエチレン(20モル)ソルビタンモノオレイン酸エステル、
 化合物V: ポリオキシエチレン(20モル)ステアリルアミン
 *1: ジエチレングリコールモノメチルエーテル

【0056】

【表 4】

	塗布液の外観	塗膜の外観	予備焼成後の 薄膜の状態	焼成後の薄膜 の状態	膜厚(μm)
比較例1	○	○	×	×	0.17
比較例2	○	○	×	×	0.16
比較例3	×	×	×	×	—
比較例4	×	×	×	×	—
比較例5	○	×	×	×	—
比較例6	○	×	×	×	—
比較例7	○	○	×	×	0.29
比較例8	○	○	×	×	0.10
比較例9	○	○	×	×	—
比較例10	○	○	×	×	—
比較例11	×	×	×	×	—
比較例12	○	×	×	×	—
比較例13	○	○	×	×	0.24
比較例14	○	○	×	×	—
比較例15	×	×	×	×	—

【0057】

表1および表2から明らかなように、実施例1～20の塗布液は、いずれも炭素数1～6のカルボン酸で構成されるカルボン酸マグネシウム塩(a)と界面活性剤(b)および多価アルコール化合物(c)を含有している。これらの含有量は、a成分が5重量%以上50重量%以下、b成分が0.01重量%以上2.5重量%以下、そしてc成分が0.05重量%以上40重量%以下であり、かつa成分がc成分の含有量を超える割合で含有されている。さらにa成分およびc成分の含有量の和が塗布液全体の重量の80重量%以下である。

【0058】

このような塗布液は、透明かつ均一であり、かつそれを用いて基板上に塗布すると、塗膜は、予備焼成時および焼成後において、均一かつ透明であり、ひび割れなどのない酸化マグネシウム薄膜を作成することができた。

【0059】

一方、表3および表4から明らかなように、比較例1および2の塗布液では、c成分含有量がa成分含有量を上回り、比較例7および8では、b成分が2.5

重量%を超えている。このような塗布液を用いると、形成される酸化マグネシウム薄膜が白濁を生じる。

【0060】

比較例 3 および 4 の塗布液では、a 成分が 50 重量%を上回り、比較例 11 では、a 成分と c 成分の総和が 80 重量%を超え、比較例 15 では a 成分が炭素数 1～6 のカルボン酸マグネシウム塩ではない。このような塗布液においては、溶媒中にカルボン酸マグネシウム塩が完全に溶解せず、固体として存在するため、塗布液が白濁する。表 4 から、そのような塗布液を用いて塗布・成膜を行っても、均一かつ透明な薄膜を得ることができないことがわかる。

【0061】

比較例 5 および 6 の塗布液では、b 成分の含有量が 0.01 重量%未満である。比較例 12 では、b 成分の含有量が 0.01 重量%未満であるのに加えて、c 成分の分子量が 1000 を超えている。このような塗布液は、塗布時に基板上ではじかれてしまい均一に塗布することができなかった。

【0062】

比較例 9 および 10 の塗布液では、c 成分が 0.05 重量%未満であり、そして、比較例 13 では、c 成分が 0.05 重量%未満であるのに加えて、c 成分の分子量が 1000 を超えている。比較例 14 では c 成分が多価アルコールではない。このような塗布液においては、基板上でカルボン酸マグネシウム塩が結晶化し、白濁を生じる。

【0063】

このように、いずれの比較例においても、焼成後に透明かつ均一な酸化マグネシウム薄膜が得られなかった。

【0064】

【発明の効果】

本発明によれば、このように、基板上に均一に塗布することが可能であり、透明かつ均一で実用に耐えうる膜厚を有する酸化マグネシウム薄膜を形成することの可能な、塗布液が提供される。この塗布液は水を主成分とする溶媒をベースとしているので、環境を汚染することがなく、人体にも安全である。本発明の酸化

マグネシウム薄膜形成用塗布液は、プラズマディスプレイパネル（PDP）用誘電体保護膜、絶縁膜、触媒膜、表面保護膜など、多くの分野に広く利用され得る。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 均一性および透明性に優れ、必要とされる十分な厚みを有する酸化マグネシウム薄膜を基板上に形成することの可能な水系の塗布液を提供すること。

【解決手段】 (a) 炭素数 1 ～ 6 のカルボン酸のマグネシウム塩、(b) 界面活性剤、(c) 多価アルコール化合物、および (d) 実質的に水からなる溶媒を含有する酸化マグネシウム薄膜形成用水系塗布液。この塗布液においては、該塗布液全体の重量を基準として、該カルボン酸マグネシウム塩が 5 重量%以上 5 0 重量%以下、該界面活性剤が 0 . 0 1 重量%以上 2 . 5 重量%以下、そして該多価アルコール化合物が 0 . 0 5 重量%以上 4 0 重量%以下の割合で含有され；該カルボン酸マグネシウム塩が、該多価アルコール化合物の含有量以上の量で含有され、かつ該カルボン酸マグネシウム塩および該多価アルコール化合物の合計重量が塗布液全体の重量の 8 0 重量%以下であり、そして、該カルボン酸マグネシウム塩、界面活性剤、および多価アルコール化合物が、該溶媒に溶解した状態である。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 3 - 0 7 3 8 9 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 4 3 4 1]

1. 変更年月日 1 9 9 4 年 1 1 月 9 日

[変更理由] 住所変更

住 所 東京都渋谷区恵比寿四丁目 2 0 番 3 号

氏 名 日本油脂株式会社